

POWERED BY **Dialog**

Synergistic herbicide compsn. - contg. mixt. of N-substd.-chloroacetanilide and pyrazole deriv.
Patent Assignee: TOKUYAMA SODA KK

Patent Family

Patent Number	Kind	Date	Application Number	Kind	Date	Week	Type
JP 60202803	A	19851014	JP 8458510	A	19840328	198547	B
JP 93002642	B	19930113	JP 8458510	A	19840328	199305	

Priority Applications (Number Kind Date): JP 8458510 A (19840328)

Patent Details

Patent	Kind	Language	Page	Main IPC	Filing Notes
JP 60202803	A		17		
JP 93002642	B		32	A01N-043/56	Based on patent JP 60202803

Abstract:

JP 60202803 A

Compsn. contains as active component a mixt. of N-substd.-chloroacetanilide of formula (I) (where A is H, halogen, alkyl, alkoxy or alkylthio; R1, R2 and R3 are independently H, halogen, alkyl, alkoxy, or alkylthio) and pyrazole deriv. of formula (II) (where R4 and R5 are alkyl; Y is halogen or nitro; n is 1 or 2; Z is alkyl; acetylalkyl; opt. substd. phenyl, benzyl, phenacyl; or (IV) (Z' is H or halogen)).

(I) is prepd. by reacting cpd. of formula (III) with chloroacetyl halide in presence of acid binder (e.g., trimethylamine pyridine, sodium alcoholate or sodium carbonate).

ADVANTAGE - The mixt. has broad herbicidal spectrum at low use rate. The mixt. can be used in uplands, paddy fields, fruit gardens, turf, forests and non-crops land. (I) is new excepting (I) (where A is H or alkyl; R1 is alkyl; R2 is H, alkyl or alkoxy; R3 is H, alkyl or halogen).

0/0

Derwent World Patents Index

© 2001 Derwent Information Ltd. All rights reserved.

Dialog® File Number 351 Accession Number 4466738



OK

(30)

⑩ 日本国特許庁 (J P)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A) 昭60-202803

⑬ Int. Cl.⁴ 識別記号 庁内整理番号 ⑭ 公開 昭和60年(1985)10月14日
 A 01 N 43/56 7215-4H
 //(A 01 N 43/56 7215-4H
 43:10) 7215-4H 審査請求 未請求 発明の数 1 (全17頁)

⑮ 発明の名称 除草剤組成物

⑯ 特 願 昭59-58510

⑰ 出 願 昭59(1984)3月28日

⑱ 発 明 者 加 藤 祥 三 藤沢市遠藤1090
 ⑱ 発 明 者 竹 松 哲 夫 宇都宮市峰町612
 ⑱ 発 明 者 小 笠 原 勝 宇都宮市今泉町2844-7
 ⑱ 発 明 者 石 崎 雅 彦 相模原市松ケ枝町9-19
 ⑲ 出 願 人 徳 山 曹 達 株 式 会 社 徳山市御影町1番1号

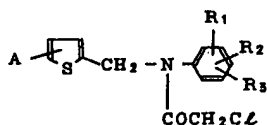
明 細 書

1. 発明の名称

除草剤組成物

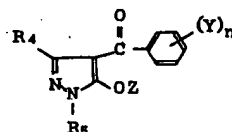
2. 特許請求の範囲

次式



(但し、式中Aは水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、またはアルキルチオ基を示し、R₁、R₂及びR₃はそれぞれ同種または異種の水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を示す。)で表わされるN-置換-クロロアセトアニリドと

次式



(但し、R₄、R₅はアルキル基、Yはハロゲン原子又はニトロ基、nは1又は2、Zはアルキル基；アセチルアルキル基；置換又は非置換のフェニル基、ベンジル基、フェナシル基；又は $-\text{CH}_2\text{CO}\overset{\text{CH}_3}{\underset{\text{CH}_3}{\text{C}}}\text{CH}_2\text{Z}'$ (但し、Z'は水素原子又はハロゲン原子)である。)で表わされるピラゾール誘導体とを有効成分とすることを特徴とする除草剤組成物。

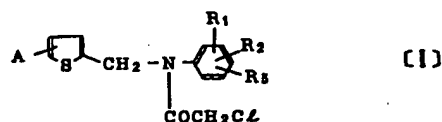
3. 発明の詳細な説明

本発明はN-置換-クロロアセトアニリドとピラゾール誘導体を有効成分とすることを特徴とする除草剤組成物に関するものである。

本質的に除草剤に要求される性質として、下記の4つの事項がある。即ち、1つには作

物に安全であること、2つには作物生育地域に生育する多種類の雑草を完全枯死せしめるのに必要な幅広い殺草スペクトルを有すること、3つには除草剤の効力が長期的に持続すること、4つには少量施用でより効果的な除草作用を有すること、である。

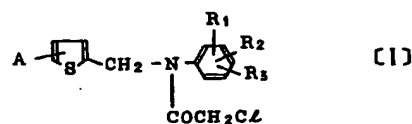
本発明者らは以上のような性質を満たす優れた除草剤の開発を目指して鋭意研究を重ね、下記一般式〔I〕



(ただし、式中Aはハロゲン原子、アルコキシ基、またはアルキルチオ基を示し、R₁、R₂及びR₃はそれぞれ同種または異種の水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を示す)で示されるN-置換-クロロアセトアニリドを既に提案した(特願昭58-111077号)。本発

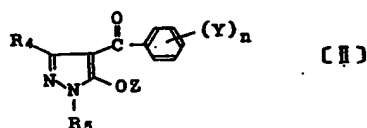
明者はさらに、上記一般式〔I〕で示されるN-置換-クロロアセトアニリドとピラゾール誘導体を有効成分とする除草剤組成物が、それぞれ単独の性質からは全く予期できない程の相乗作用を現わすこと、即ち、低用量で幅広い殺草スペクトルをもつことを見出した。本発明者らはこれらの新知見に基づき、本発明を完成し提案するに至った。

即ち、本発明は、下記一般式〔I〕



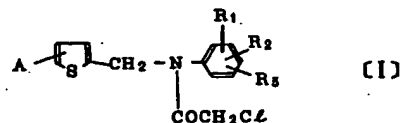
(但し、式中Aは水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、またはアルキルチオ基を示し、R₁、R₂及びR₃はそれぞれ同種または異種の水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を示す。)で表わされるN-置換-クロロアセトアニリドと

下記一般式〔II〕



(但し、R₄、R₅はアルキル基、Yはハロゲン原子又はニトロ基、nは1又は2、Zはアルキル基；アセチルアルキル基；置換又は非置換のフェニル基、ベンジル基、フェナシル基；又は $-\text{CH}_2\text{CO}-\overset{\text{CH}_3}{\underset{\text{CH}_3}{\text{C}}}-\text{CH}_2\text{Z}'$ (但し、Z'は水素原子又はハロゲン原子)である。)で表わされるピラゾール誘導体とを有効成分とすることを特徴とする除草剤組成物である。

本発明の除草剤組成物の一方の成分は、下記一般式〔I〕で示されるN-置換クロロアセトアニリドである。



(但し、式中Aは水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、またはアルキルチオ基を示し、R₁、R₂及びR₃はそれぞれ同種または異種の水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を示す。)

上記一般式〔I〕で示されるN-置換クロロアセトアニリドのうち、Aが水素原子またはアルキル基であり、R₁はアルキル基であり、R₂は水素原子、アルキル基またはアルコキシ基であり、R₃は水素原子、アルキル基またはハロゲン原子である化合物は、米国特許第3901917号により公知である。しかし、その他の大部分は、新規な化合物である。

前記一般式〔I〕中、A、R₁、R₂及びR₃

で示されるハロゲン原子の具体例としては、塩素、臭素、フッ素、ヨウ素の各原子が挙げられる。前記一般式〔I〕中、A、R₁、R₂及びR₃で示されるアルコキシ基は特に限定されないが、一般には炭素原子数1～6個の直鎖状または分枝状の飽和あるいは不飽和基が好適である。一般に好適に使用される該アルコキシ基の具体例を提示すると、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、t-ブトキシ基、n-ペントキシ基、n-ヘキソキシ基、アリルオキシ基等が挙げられる。

前記一般式〔I〕中、A、R₁、R₂及びR₃で示されるアルキルチオ基は、特に限定されず公知のものが使用出来るが、一般には炭素原子数1～6個の直鎖状または分枝状の飽和あるいは不飽和基が好適である。好適に使用される該アルキルチオ基の具体例を提示すると、メチルチオ基、エチルチオ基、n-プロピルチオ基、t-ブチルチオ基、n-ペンチルチオ基、n-ヘキシルチオ基、アリルチオ

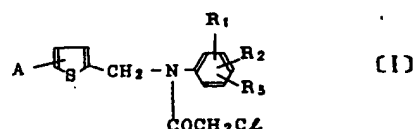
基等が挙げられる。更にまた前記一般式〔I〕中、A、R₁、R₂及びR₃で示されるアルキル基は、特に限定されず公知のものが使用出来るが、一般には炭素原子数1～6個の直鎖状または分枝状の飽和基あるいは不飽和基が好適である。一般に好適に使用される該アルキル基の具体例を提示すると、メチル基、エチル基、n-プロピル基、iso-プロピル基、n-ブチル基、iso-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、アリル基、エチニル基等が挙げられる。

前記一般式〔I〕で示されるN-置換-クロロアセトアニリドの構造は、次の手段によって確認することができる。

(イ) 赤外吸収スペクトル(IR)を測定することにより、3150～2800cm⁻¹付近にC-H結合に基づく吸収、1680～1670cm⁻¹付近にアミド基のカルボニル結合に基づく特性吸収を観察することが出来る。

(ロ) 質量スペクトル(m/e)を測定し、観察

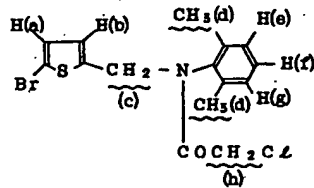
される各ピーク(一般にはイオン質量数mをイオンの荷電数eで除したm/eで表わされる値)に相当する組成式を算出することにより、測定に供した化合物の分子量ならびに該分子内における各原子団の結合様式を知ることが出来る。すなわち、測定に供した試料を一般式〔I〕



で表わした場合、一般に分子イオンピーク(以下M⁺と略記する)が分子中に含有されるハロゲン原子の個数に応じて同位体存在比に従った強度比で観察されるため、測定に供した化合物の分子量を決定することが出来る。さらに前記一般式〔I〕で示されるN-置換-クロロアセトアニリドについては、M⁺-Cl、M⁺-COCH₂Cl及び

A-C₆H₄-CH₂⁺に相当する特徴的な強いピークが観察され、該分子の結合様式を知ることが出来る。

(ハ) ¹H-核磁気共鳴スペクトル(¹H-NMR)を測定することにより、前記一般式〔I〕で表わされるN-置換-クロロアセトアニリド中に存在する水素原子の結合様式を知ることが出来る。前記一般式〔I〕で示されるN-置換-クロロアセトアニリドの¹H-NMR(δ, ppm:テトラメチルシラン基準, 重クロロホルム溶媒中)の具体例として、N-[2'-(5'-ブロム)-チエニルメチル]-N-クロロアセト-2,6-ジメチルアニリドについて¹H-NMR図を第1図に示す。その解析結果を示すと次のとおりである。



すなわち、2.0 ppm にプロトン 6 個分に相当する一重線が認められ、フェニル基の 2 及び 6 位に置換したメチル基(d)によるものと帰属できる。3.6 ppm にプロトン 2 個分に相当する一重線が認められ、クロロアセチル基中のメチレン基(b)によるものと帰属できる。4.75 ppm にプロトン 2 個分に相当する一重線が認められ、メチレン基(c)によるものと帰属できる。6.67 ppm にプロトン 2 個分に相当する四重線が認められ、チオフエン環に置換したプロトン(a), (b)によるものと帰属できる。6.95~7.30 ppm にプロトン 3 個分に相当する多重線が認められ、フェニル基に置換したプロトン

(e), (f), (g)によるものと帰属できる。

前述の一般式 [I] で示される N-置換-クロロアセトアニリドの $^1\text{H-NMR}$ の特徴を総括すると、クロロアセチル基のメチレンプロトンは、通常 3.6~3.8 ppm 付近に一重線で、アミノメチレン基のメチレンプロトンは 4.8 ppm 付近に一重線で(ただし、アニリン側の 2, 6 位が非対称的に置換基が存在する場合には二重線となって現われる場合がある)、チオフエン環側のプロトンは 5.8~7.4 ppm に、ベンゼン環側のプロトンは 6.0~7.7 ppm に特徴的なピークを示す傾向がある。

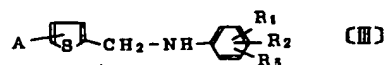
(二) 元素分析によつて炭素、水素、窒素、及びハロゲンの各重量%を求め、さらに認知された各元素の重量%の和を 100 から減じることにより、酸素の重量%を算出することが出来、従つて、組成式を決定することが出来る。

また、N-置換-クロロアセトアニリドは、

前記一般式 [I] 中の A, R_1 , R_2 及び R_3 の種類によつてその性状が多少異なるが、一般に常温常圧においては淡黄色または黄色の粘稠液体または固体であり、極めて高沸点を有するものが多い。具体的には後述する合成例に示すが、上記化合物は一般の有機化合物と同じように分子量が大きくなる程沸点が高くなる傾向がある。該化合物は、ベンゼン、エーテル、アルコール、クロロホルム、四塩化炭素、アセトニトリル、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドなどの一般有機溶媒に可溶であるが、水にはほとんど溶けない。

前記一般式 [I] で示される N-置換-クロロアセトアニリドの製造方法は特に限定されるものではない。代表的な製造方法を記述すれば以下のようになる。

一般式



(ただし、A は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、またはアルキルチオ基を示し、 R_1 , R_2 及び R_3 はそれぞれ同種または異種の水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を示す。) で表わされる化合物と、一般式 ClCH_2COX (ただし、X はハロゲン原子を示す。) で表わされるクロロアセチルハロゲンイドとを反応させることによつて、前記一般式 [I] で表わされる N-置換-クロロアセトアニリドを得ることが出来る。

原料となる前記一般式 [II] で表わされるアニリン誘導体は如何なる方法で得られたものでも使用出来る。

前記一般式 [III] で表わされる化合物とクロロアセチルハロゲンイドとの反応において、両化合物の仕込みモル比は必要に応じて適宜決定すればよいが、通常等モルもしくはクロロアセチルハロゲンイドをやや過剰モルを使用するのが一般的である。

また前記反応においては、ハロゲン化水素が副生する。このハロゲン化水素は反応系内で一般式〔Ⅲ〕で表わされる化合物と反応し、生成物の収率を低下させる原因になるので、通常は反応系内にハロゲン化水素捕捉剤を共存させることが好ましい。該ハロゲン化水素の捕捉剤は特に限定されず公知のものを使用することが出来る。一般に好適に使用される該捕捉剤としてトリメチルアミン、トリエチルアミン、トリプロピルアミン等のトリアルキルアミン、ピリジン、ナトリウムアルコレート、炭酸ナトリウム等が挙げられる。

前記反応に際しては一般に有機溶媒を用いるのが好ましい。該溶媒として好適に使用されるものを例示すれば、ベンゼン、トルエン、キシレン、ヘキサン、ヘプタン、石油エーテル、クロロホルム、塩化メチレン、塩化エチレン等の脂肪族または芳香族の炭化水素類あるいはハロゲン化炭化水素類；ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の

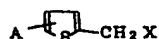
エーテル類；アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類；アセニトリルなどのニトリル類；N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジエチルホルムアミド等のN,N-ジアルキルアミド類；ジメチルスルホキシド等が挙げられる。

前記反応における原料の添加順序は特に限定されないが、一般には溶媒に前記一般式〔Ⅲ〕で示される化合物を溶解して反応器に仕込み溶媒に溶解したクロロアセチルハロゲニドを攪拌下に添加するのがよい。勿論連続的に反応系に原料を添加し生成した反応物を連続的に該反応系から取出すことも出来る。

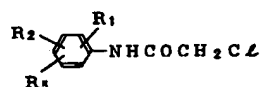
前記反応における温度は広い範囲から選択出来、一般には -20°C ～ 150°C 、好ましくは 0°C ～ 120°C の範囲から選ばば十分である。反応時間は原料の種類によってもちがいが、通常5分～10日間、好ましくは1～40時間の範囲から選ばば十分である。また反応中においては、攪拌を行うのが好ましい。

反応系から目的生成物すなわち前記一般式〔Ⅰ〕で示されるN-置換-クロロアセトアニリドを単離精製する方法は特に限定されず公知の方法を採用出来る。例えば反応液を冷却または自然放冷で、室温またはその近くにもどし、反応溶媒、残存するハロゲン化水素捕捉剤を留去した後、残渣をベンゼン抽出する。上記操作で、副生するハロゲン化水素とハロゲン化水素捕捉剤とから生成する塩及び高分子化合物を分離する。該ベンゼン層については、芒硝、塩化カルシウム等の乾燥剤で乾燥した後、ベンゼンを留去し、残渣を真空蒸留することによって目的物を取得する。真空蒸留により単離精製する他、クロマトグラフィーによる精製、あるいは生成物が固体である場合にはヘキサン等の溶媒から再結晶することにより精製することも出来る。

さらにまた、一般式



(ただし、Aは水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、またはアルキルチオ基を示し、Xはハロゲン原子を示す。)で表わされる2-置換チオフエンと、一般式



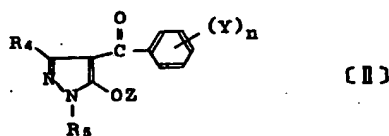
(ただし、 R_1 、 R_2 及び R_3 は同種または異種の水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基を示す。)で表わされるクロロアセトアニリドとを反応させることによって前記一般式〔Ⅰ〕で表わされるN-置換-クロロアセトアニリドを得ることが出来る。

原料となる該2-置換チオフエンならびに該クロロアセトアニリドは如何なる方法で得られたものでも使用出来る。また、該反応を実施する際の諸条件ならびに単離精製方法は既に述べた一般式〔Ⅲ〕で示される化合物とクロロアセチルハロゲニドとの反応において用

いた諸条件ならびに単離精製方法とほぼ同様な条件が採用出来る。

前記の一般式〔I〕で示されるN-置換-クロロアセトアニリドは水田に発生するノビエ、コナギ等の一年生雑草に加え、ホタルイ、ミズガヤツリ、オモダカ、ウリカワ等の多年生雑草に対して幅広い殺草スペクトラムを有し、かつ水稻に被害を与えることなく、効率的に防除し得る優れた除草剤である。特に近年問題になっている多年生のミズガヤツリに対しては極く少量の撒布により他の除草剤には例を見ない卓越した除草活性をもっている。

本発明の除草剤組成物の他の成分は、下記一般式〔II〕



(但し、 R_4 、 R_5 はアルキル基、 Y はハロゲ

ルアルキル基としては、アセチルメチル基、アセチルエチル基等を挙げることができる。さらにまた、上記一般式〔II〕中の Z で示されるフェニル基、ベンジル基、フエナシル基の置換基としては、塩素、臭素、フッ素、ヨウ素等のハロゲン原子、メチル基、エチル基等のアルキル基又はニトロ基が挙げられる。これらの置換基が1乃至2置換したものが通常使用される。

上記一般式〔II〕で示されるピラゾール誘導体の製造方法としては、公知の製造方法が何ら制限されず採用される。

前記一般式〔I〕で示されるピラゾール誘導体は、カロチノイドの生合成阻害に基づくクロロフィルの光酸化によってクロロシスを誘起することが知られており、多年生雑草を含めて広葉雑草には卓効を示すが、ノビエ、アゼナ、ミズガヤツリ等の雑草にはその効果が弱いという性質を有する。

本発明の除草剤組成物は、前記一般式〔I〕

ン原子又はニトロ基、 n は1又は2、 Z はアルキル基；アセチルアルキル基；置換又は非置換のフェニル基、ベンジル基、フエナシル

基；又は $-\text{CH}_2\text{CO}-\overset{\text{CH}_3}{\underset{\text{CH}_3}{\text{C}}}-\text{CH}_2\text{Z}'$ (但し、 Z' は水素原子又はハロゲン原子)である。)で表わされるピラゾール誘導体とを有効成分とすることを特徴とする除草剤組成物である。

上記一般式〔II〕中の R_4 、 R_5 及び Z で示されるアルキル基としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、 i -プロピル基等が挙げられる。就中、メチル基のものが除草活性が高いため好適に使用される。また、上記一般式〔II〕中の Y 及び Z' で示されるハロゲン原子の具体例としては、塩素、臭素、フッ素、ヨウ素の各原子が挙げられる。就中、 Y が塩素、 n が2であり、且つベンゼン環の2位及び4位に塩素が結合したピラゾール誘導体は、特に除草活性が高く好適に使用される。さらに、上記一般式〔II〕中の Z で示されるアセチ

で示されるN-置換-クロロアセトアニリドと、前記一般式〔II〕で示されるピラゾール誘導体との使用割合の広い範囲で優れた除草効果が得られる。しかし、両者の使用割合は、N-置換-クロロアセトアニリド1重量部に対して、ピラゾール誘導体が0.01~50重量部の範囲であることが一般的である。さらに好ましくは、N-置換-クロロアセトアニリド1重量部に対して、ピラゾール誘導体を0.2~20重量部とすることにより、除草効果はより優れたものとなる。

本発明の除草剤組成物を水田土壌に同時に播種されたノビエと水稻に対して使用するとき、1アール当り0.1gの濃度で処理するとノビエの発芽は完全に阻止されるが、水稻は100g処理した場合でも全く影響がない。従って、一般に1アール当り0.15~200g、好ましくは0.5~50gの有効成分量として水田に使用すればよい。

本発明の除草剤組成物は、雑草の発芽前か

よび発芽後に処理しても効果を有し、土壌処理、茎葉処理においても高い効果が得られる。施用場所としては水田はもちろんのこと、各種穀類、マメ類、ワタ、野菜類等の畑、果樹園、芝生地、牧草地、茶園、桑園、森林地、非農耕地等で広範囲に有用である。

本発明の除草剤組成物は、原体そのものを撒布しても良く、担体や必要に応じては他の補助剤と混合して調製した製剤として撒布しても良い。製剤形態は特に制限されず、従来公知の製剤形態が使用される。たとえば粉剤、粗粉剤、微粒剤、粒剤、水和剤、乳剤、フロアブル製剤、油懸濁剤等に調製して使用することが出来る。

本発明の除草剤組成物を製剤に調製するに際し、使用する適当な固体担体としては、従来公知のものが何ら制限なく使用し得る。本発明に於て好適に使用される固体担体を例示すると次のとおりである。例えばカオリナイト群、モンモリロナイト群、アタパルジヤイ

ト群或いはジークライト等で代表されるクレー類；タルク、雲母、葉ロウ石、軽石、パーミキュライト、石こう、炭酸カルシウム、ドロマイト、けいそう土、マグネシウム石灰、リン灰石、ゼオライト、無水ケイ酸、合成ケイ酸カルシウム等の無機物質；大豆粉、タバコ粉、クルミ粉、小麦粉、木粉、でんぷん、結晶セルロース等の植物性有機物質；クマロン樹脂、石油樹脂、アルキド樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリアルキレングリコール、ケトン樹脂、エステルガム、コーパルガム、ダンマルガム等の合成または天然の高分子化合物；カルナバロウ、密ロウ等のワックス類あるいは尿素等が挙げられる。

また、本発明に於いて使用される液体担体としては、従来公知のものが何ら制限されずに使用し得る。本発明に於て好適に使用される液体担体を例示すると次のとおりである。クロシン、鉱油、スピンドル油、ホワイトオイル等のパラフィン系もしくはナフテン系炭

化水素；ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、クメン、メチルナフタリン等の芳香族炭化水素；四塩化炭素、クロロホルム、トリクロルエチレン、モノクロルベンゼン、 α -クロルトルエン等の塩素系炭化水素；ジオキサン、テトラヒドロフランのようなエーテル類；アセトン、メチルエチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン、アセトフェノン、イソホロン等のケトン類；酢酸エチル、酢酸アミル、エチレングリコールアセテート、ジエチレングリコールアセテート、マレイン酸ジブチル、コハク酸ジエチル等のエステル類；メタクル、 α -ヘキサノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール等のアルコール類；エチレングリコールエチルエーテル、エチレングリコールフェニルエーテル、ジエチレングリコールエチルエーテル、ジエチレングリコールブチルエーテル等のエーテルアルコール類；ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の極性

溶媒あるいは水等が挙げられる。

また、本発明に於ける製剤の調製には、乳化、分散、湿潤、鉱展、結合、崩壊性調節、有効成分安定化、流動性改良、防錆等の目的で従来公知の界面活性剤が何ら制限されず使用し得る。界面活性剤としては、非イオン性、陽イオン性、陰イオン性及び両イオン性のものが使用されるが、通常は非イオン性および（または）陰イオン性のものが使用される。適当な非イオン性界面活性剤としては、たとえば、ラウリルアルコール、ステアリルアルコール、オレイルアルコール等の高級アルコールにエチレンオキシドを重合付加させたもの；イソオクチルフェノール、ノニルフェノール等のアルキルフェノールにエチレンオキシドを重合付加させたもの；ブチルナフトール、オクチルナフトール等のアルキルナフトールにエチレンオキシドを重合付加させたもの；パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸等の高級脂肪酸にエチレンオキシドを重合

付加させたもの；ステアリルりん酸、ジラウ
リルりん酸等のモノもしくはジアルキルりん
酸にエチレンオキシドを重合付加させたもの
；ドデシルアミン、ステアリン酸アミド等の
アミンにエチレンオキシドを重合付加させた
もの；ソルビタン等の多価アルコールの高級
脂肪酸エステルおよびそれにエチレンオキシ
ドを重合付加させたもの；エチレンオキシド
とプロピレンオキシドを重合付加させたもの
；ジオクチルサクシネート等の多価脂肪酸と
アルコールとのエステル等があげられる。適
当な陰イオン性界面活性剤としては、たとえ
ば、ラウリル硫酸ナトリウム、オレイルアル
コール硫酸エステルアミン塩等のアルキル硫
酸エステル塩；スルホコハク酸ジオクチルエ
ステルナトリウム、2-エチルヘキセンスル
ホン酸ナトリウム等のアルキルスルホン酸塩
；イソプロピルナフタレンスルホン酸ナトリ
ウム、メチレンビスナフタレンスルホン酸ナ
トリウム、リグニンスルホン酸ナトリウム、

定されるものではなく、従来公知の方法が使用される。例えば、水和剤の具体的な調製方法として、ピラゾール誘導体10重量部とN-置換-クロロアセトアニリド1重量部を有機溶剤に溶かし、該溶液に界面活性剤及び担体を加えよく粉砕混合した後、有機溶剤を除去することにより水和剤を得る方法がある。

また、たとえば乳剤の具体的な調製方法として、ピラゾール誘導体10重量部、N-置換-クロロアセトアニリド5重量部と界面活性剤15重量部をキシレン等の石油系溶剤によく混合して乳剤を得る方法がある。

さらにまた、たとえば粒剤の具体的な調製方法として、ピラゾール誘導体10重量部、N-置換-クロロアセトアニリド1重量部、界面活性剤及び水をよく混練し、続いて、担体及び界面活性剤を加え、よくかき混ぜた後所定の粒径に押し出し、乾燥することにより粒剤を得る方法がある。

以上に説明した本発明の除草剤組成物は、

ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム等のアリールスルホン酸塩；トリポリリン酸ソーダ等のリン酸塩等があげられる。

また、本発明に於ける製剤では、従来公知の補助剤が何ら制限なく使用される。補助剤は、種々の目的で用いられるが、例えば粒剤の崩壊性等の性状を改善することにより除草効果を高めようとする場合にも用いられる。本発明に於いて好適に使用される補助剤を例示すると次のとおりである。カゼイン、セラチン、アルブミン、ニカワ、アルギン酸ソーダ、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリビニルアルコール等の高分子化合物等が挙げられる。

上記の担体、界面活性剤および補助剤は、製剤の剤型、適用場面等を考慮して、目的に応じてそれぞれ単独にあるいは組合わせて適宜使用される。

本発明に於ける製剤の調製方法は、特に限

その各成分単独の性質からは全く予想できない除草効果を示す。即ち、幅広い殺草スペクトルを有する。さらに、各成分単独の施用量と同程度でより大きい除草効果を有する。しかも、作物に対しては安全である。

従って、本発明の除草剤組成物は、除草剤に要求される性質を十分に満たすものであって、その有用性は極めて大きいものである。

以下に、本発明の除草剤組成物を実施例で具体的に説明するが、本発明は、これら実施例に限定されるものではない。

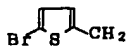
N-置換-クロロアセトアニリドの合成

(合成例1)

N-[2'-(5'-ブロム)-チエニルメチル]-2,6-ジメチルアニリン1.81g(6.14×10^{-3} mole)をベンゼン40mlに溶解しトリエチルアミン0.81g(7.98×10^{-3} mole)を加え、水水中に設置した。次いでクロルアセチルクロリド0.83g(7.37×10^{-3} mole)のベンゼン溶液(15ml)を

徐々に添加した。3時間攪拌した後、50℃で1時間加熱した。該反応混合物を室温に冷却した後、水50ml、2N-塩酸50ml、続いて水50mlによって順次洗浄し、ベンゼン層を無水硫酸ナトリウムで乾燥した。その後カラムクロマトにて精製し、黄色固体1.13gを得た。このものの赤外スペクトルを測定した結果、 $3110 \sim 2900 \text{ cm}^{-1}$ にC-H結合に基づく吸収、 1670 cm^{-1} にアミド基のカルボニル結合に基づく強い吸収を示した。その元素分析値はC 48.43%, H 4.05%, N 3.99%であって、 $\text{C}_{15}\text{H}_{15}\text{NBOBrCl}$ (372.71)に対する計算値である C 48.20%, H 4.32%, N 3.75%に良く一致した。

また、質量スペクトルを測定したところ、 $m/e 371$ に分子量に対応する分子イオンピーク、 M^+ 、 $m/e 336$ に $M^+-\text{Cl}$ に対応するピーク、 $m/e 293$ に $M^+-\text{COCH}_2$ 、 Cl に対応するピーク、 $m/e 143$ (100

%)に  に対応する各ピークを示した。

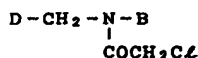
さらに、 ^1H -核磁気共 分光法については、明細書中に具体例として示したとおりである。

上記の結果から、単離生成物がN-[2'-(5'-ブロム)-チエニルメチル]-N-クロロアセト-2,6-ジメチルアニリド(以下、化合物(I)と略記する)であることが明らかとなった。収率はN-[2'-(5'-ブロム)-チエニルメチル]-2,6-ジメチルアニリンに対し、49.5% (3.04×10^{-3} mole)であった。

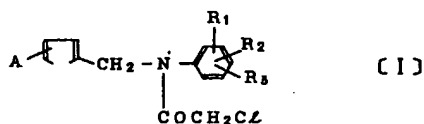
(合成例2)



合成例1と同様にして合成したN-置換-クロロアセトアニリドの性状、物性(沸点)、赤外吸収スペクトルにおける特性吸収値及び元素分析結果を併せて第1表に略記した。

第1表中の一般式



は、前記一般式(I)







































に対応し、Dは  を、Bは  を意味する。

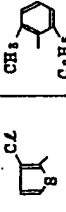
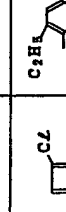
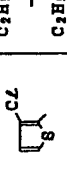
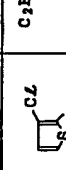
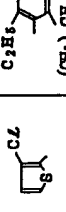
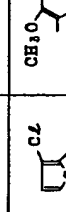
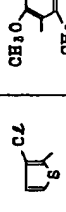
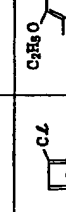
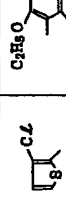

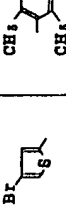
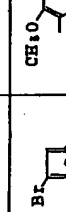
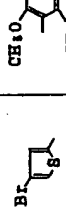
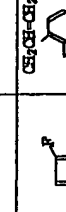
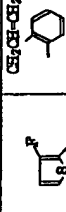
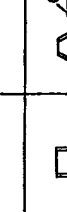
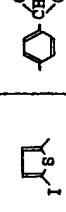
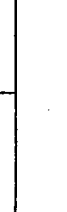
第 1 表













No.	D-CH ₂ -N-B COCH ₂ Cl		性 状	物 性 (沸点)	I R (cm ⁻¹) (C=O)	元 素 分 析 値 (%)		
	D	B				実 験 値	理 論 値	(C=O)
(2)			淡黄色 粘稠液体	168℃/ 0.40mmHg	1670	5679	479	464
(3)			淡黄色 粘稠液体	171℃/ 0.38mmHg	1670	5684	478	474
(4)			黄色固体	185℃/ 0.38mmHg	1675	5930	565	457
(5)			黄 色 粘稠液体	カラムク ロマトIC で精製	1680	5701	538	398
(6)			黄色固体	145℃/ 0.30mmHg	1680	5091	396	430
(7)			黄色固体	カラムク ロマトIC で精製	1675	4425	358	374
(8)			黄色固体	165℃/ 0.30mmHg	1675	5920	564	437
(9)			淡黄色 粘稠液体	186℃/ 0.70mmHg	1670	5933	561	433
(10)			黄色固体	175℃/ 0.30mmHg	1670	6023	597	431
						6043	598	415
						6192	642	418
						6143	631	398

No.	D-CH ₂ -N-B COCH ₂ Cl		性 状	物 性 (沸点)	I R (cm ⁻¹) (C=O)	元 素 分 析 値 (%)		
	D	B				実 験 値	理 論 値	(C=O)
(11)			黄色固体	182℃/ 0.25mmHg	1670	5988	588	400
(12)			淡黄色 粘稠液体	176℃/ 0.20mmHg	1675	6043	598	415
(13)			黄色固体	178℃/ 0.30mmHg	1680	6145	632	408
(14)			黄 色 粘稠液体	178℃/ 0.40mmHg	1670	6143	631	398
(15)			黄色固体	202℃/ 0.45mmHg	1680	6149	662	391
(16)			黄色固体	195℃/ 0.09mmHg	1680	6236	662	383
(17)			黄色固体	181℃/ 0.15mmHg	1670	5930	565	457
(18)			黄 色 粘稠液体	182℃/ 0.30mmHg	1670	5933	561	433
(19)			黄色固体	165℃/ 0.40mmHg	1675	5536	529	409
						5453	533	412
						5881	606	385
						5875	604	381
						5458	536	411
						5453	535	412
						6221	661	390
						6236	662	384
						5208	407	406
						5210	409	405

No.	D-CH ₂ -N-B COCH ₂ CL		性状	物性 (沸点)	I R (cm ⁻¹) (C=O)	元素分析値 (%)			
	D	B				実験値 (欄上部の値) 理論値 (欄下部の値)	C	H	N
(20)			淡黄色 固体	172℃/ 0.15mmHg	1670	5920 5933	59.20 59.33	5.64 5.61	4.37 4.33
(21)			淡黄色 粘稠液体	174℃/ 0.25mmHg	1670	6190 6043	61.90 60.43	6.04 5.98	4.09 4.15
(22)			黄色 粘稠液体	180℃/ 0.25mmHg	1680	6126 6143	61.26 61.43	6.32 6.31	3.90 3.98
(23)			淡黄色 固体	165℃/ 0.10mmHg	1670	5292 5233	52.92 52.33	4.40 4.40	4.25 4.04
(24)			黄色 粘稠液体	175℃/ 0.35mmHg	1680	6201 6143	62.01 61.43	6.47 6.31	3.99 3.98
(25)			淡黄色 粘稠液体	178℃/ 0.40mmHg	1680	6161 6236	61.61 62.36	6.62 6.62	3.91 3.83
(26)			淡黄色 固体	カラムクロマトにて精製	1675	5881 5876	58.81 58.76	6.01 6.04	3.77 3.81
(27)			淡黄色 固体	カラムクロマトにて精製	1670	6396 6401	63.96 64.01	7.11 7.18	3.60 3.56
(28)			淡黄色 固体	カラムクロマトにて精製	1670	6472 6475	64.72 64.75	7.43 7.43	3.46 3.43

No.	D-CH ₂ -N-B COCH ₂ CL		性状	物性 (沸点)	I R (cm ⁻¹) (C=O)	元素分析値 (%) 実験値 (欄上部の値) 理論値 (欄下部の値)			
	D	B				C	H	N	
(29)			黄色固体	カラムクロマトにて精製	1670	6358 6356	64.1 64.0	3.73 3.71	
(30)			黄色固体	178℃/ 0.30mmHg	1675	5097 5094	47.8 47.9	3.36 3.50	
(31)			黄色固体	185℃/ 0.30mmHg	1675	4280 4277	3.09 3.08	3.61 3.56	
(32)			淡黄色 粘稠液体	170℃/ 0.20mmHg	1670	4736 4634	4.08 3.90	3.66 3.60	
(33)			黄色固体	175℃/ 0.20mmHg	1680	5491 5488	4.71 4.62	4.31 4.27	
(34)			黄色固体	180℃/ 0.40mmHg	1680	5742 5730	5.41 5.39	4.04 3.93	
(35)			淡黄色 粘稠液体	188℃/ 0.35mmHg	1675	5244 5233	4.37 4.40	4.01 4.07	
(36)			淡黄色 粘稠液体	162℃/ 0.15mmHg	1670	5508 5488	4.60 4.62	4.44 4.27	
(37)			淡黄色 固体	167℃/ 0.15mmHg	1675	5747 5730	5.47 5.39	4.03 3.93	

No.	D-CH ₂ -N-B COCH ₂ CL		性状	物性 (熔点)	IR (cm ⁻¹) (C=O)	元素分析値 (%)		
	D	B				C	H	N
(38)			淡黄色 結晶液体	158℃/ 0.25mmHg	1680	5684	5.16	4.32
(39)			淡黄色 固体	165℃/ 0.15mmHg	1670	5748	5.33	3.98
(40)			淡黄色 固体	176℃/ 0.25mmHg	1670	5833	5.69	3.81
(41)			淡黄色 結晶液体	168℃/ 0.25mmHg	1670	5310	4.42	4.13
(42)			淡黄色 固体	187℃/ 0.15mmHg	1670	5354	4.80	3.92
(43)			淡黄色 固体	カラムク ロマトヒ て精製	1675	4819	4.31	3.76
(44)			淡黄色 固体	カラムク ロマトヒ て精製	1680	4635	3.92	3.63
(45)			淡黄色 固体	カラムク ロマトヒ て精製	1675	4634	3.90	3.60
(46)			淡黄色 固体	カラムク ロマトヒ て精製	1680	5928	4.59	4.31
						5934	4.68	4.33
						4433	3.98	3.21
						4430	3.96	3.23

No.	D-CH ₂ -N-B COCH ₂ CL		性状	物性 (熔点)	IR (cm ⁻¹) (C=O)	元素分析値 (%)		
	D	B				C	H	N
(47)			淡黄色 固体	カラムク ロマトヒ て精製	1675	4338	2.67	3.35
(48)			淡黄色 固体	167℃/ 0.4mmHg	1670	4334	2.67	3.37
(49)			淡黄色 固体	160℃/ 0.15mmHg	1680	6111	5.49	4.78
(50)			淡黄色 結晶液体	175℃/ 0.75mmHg	1675	5933	5.61	4.33
(51)			淡黄色 固体	158℃/ 0.20mmHg	1670	6243	5.88	4.57
(52)			淡黄色 結晶液体	161℃/ 0.15mmHg	1675	6242	5.91	4.55
						6242	5.90	4.56
						6240	5.88	4.56
						6242	5.91	4.55

次に、本発明の除草剤組成物の配合剤及び実施例を示す。尚、配合剤及び実施例中、N-置換-クロロアセトアニリドは合成例中の化合物番号〔(1)~(52)〕で表わし、ピラゾール誘導体は下記の記号〔A〕~〔O〕で表わした。

ピラゾール誘導体	記号
	〔A〕
	〔B〕
	〔C〕

	〔D〕
	〔E〕
	〔F〕
	〔G〕
	〔H〕
	〔I〕

	〔J〕
	〔K〕
	〔L〕
	〔M〕
	〔N〕
	〔O〕

配合例 1

化合物〔A〕10重量部、化合物(1)4重量部、界面活性剤ソルボール800A〔東邦化学工業(株)商標〕1.5重量部、界面活性剤デタージェント60〔ライオン油脂(株)商標〕1.5重量部およびジークライト83重量部をよく粉砕混合して水和剤を得た。

配合例 2

化合物〔A〕10重量部、化合物(10)5重量部、界面活性剤ソルボール8M100〔東邦化学工業(株)商標〕1.5重量部およびキシレン70重量部をよく混合して乳剤を得た。

配合例 3

化合物〔A〕7重量部、化合物(20)1.0重量部、ジオクチルサクシネート4.0重量部、トリポリリン酸ソーダ4.0重量部、ベントナイト4.2重量部およびタルク4.2重量部をよく混合粉砕し、水を加えて湿練した後造粒乾燥し、14~32メッシュに整粒して粒剤を得た。

配合例 4

ペントナイト40重量部、タルク5.5重量部、およびトリポリリン酸ソーダ5重量部を粉碎混合し、加水、混練後造粒乾燥し、活性成分を含まない粒状物を作る。この粒状物85重量部に化合物[A]を7重量部、化合物(30)を8重量部を含浸させ粒剤を得た。

実施例 1

5000分の1アール相当のワグナーポットに、加水混練した水田土壌を充填し、土壌表層にノビエ、タマガヤツリ、ホタルイおよびコナギ、アゼナ、キカシグサ等の広葉雑草種子を播種し、ウリカワ、ミズガヤツリの塊茎を埋め込んだ。さらに2.5葉期の稲苗(品種名:アキニシヤ)を2cmの深さに3本1株植とした。その後、約3cmの湛水条件とし、20~25℃のガラス室内で育成し、稻移植7日後(ノビエが約0.8葉期の時期)および14日後(ノビエが約2葉期の時期)に、配合例1に準じて調製した水和剤を水に希釈し

所定量滴下処理した。その後ガラス室内で育成し、薬剤処理後21日目に除草効果および水稻におよぼす被害を調査した。その結果は第2表に示した。

除草効果 抑草率(%)	水稻被害
5:100(完全枯死)	±:僅小害
4:75~99	+:小害
3:50~74	#:中害
2:25~49	
1:1~24	
0:0(全く効果が認められない)	

第 2 表

化合物	施用量 (g/a)	処理期 (移植後 日数)	除 草 活 性					水 稻 害 害
			ノビエ	広葉雑草	タマガヤツリ	ホタルイ	ウリカワ	ミズガヤツリ
(3)	2	7	5	4	5	4	0	3
		14	5	3	4	3	0	2
	10	7	5	4	5	4	0	5
		14	5	3	4	3	0	3
[A]+(3)	8+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	4	5	4
[A]+(3)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
(17)	2	7	5	3	3	3	0	3
		14	5	2	2	2	0	1
	10	7	5	4	5	4	0	5
		14	5	3	4	2	0	2
U+(17)	8+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	4	5	4
U+(17)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
(18)	2	7	5	3	3	3	0	3
		14	5	2	2	1	0	1
	10	7	5	4	4	4	0	5
		14	5	3	3	2	0	2
U+(18)	8+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	4	5	3
U+(18)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	4	5	4
(20)	1	7	5	4	5	4	0	4
		14	5	4	4	4	0	3
	10	7	5	5	5	5	3	5
		14	5	4	4	4	2	4
U+(20)	9+1	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
U+(20)	10+1	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
(23)	1	7	5	4	5	4	0	4
		14	5	4	4	3	0	3
	10	7	5	4	5	4	3	4
		14	5	4	4	4	2	4
U+(23)	9+1	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
U+(23)	10+1	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5

(30)	2	7	5	4	5	4	5	4	0	3	-
LJH(30)	10	14	5	3	5	3	4	3	0	2	-
	8+2	14	5	3	5	3	4	4	0	5	-
	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	4	-
(36)	2	7	5	4	5	5	5	5	5	4	-
LJH(36)	10	14	5	3	5	4	4	3	0	2	-
	8+2	14	5	3	5	4	4	4	0	5	-
	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
(38)	1	7	5	3	5	5	5	5	5	4	-
LJH(38)	10	14	5	2	5	4	4	4	0	3	-
	9+1	14	5	3	5	4	4	4	0	5	-
	10+1	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
(46)	2	7	5	3	5	5	5	5	5	4	-
LJH(46)	10	14	5	2	5	4	4	3	1	3	-
	8+2	14	5	3	5	4	4	4	0	5	-
	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(46)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(1)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(2)	10+6	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(4)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(5)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(6)	10+3	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(7)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-

LJH(8)	10+4	7	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(9)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(10)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(11)	10+3	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(12)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(13)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(14)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(15)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(16)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(19)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(21)	10+3	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(22)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(24)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(25)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(26)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(27)	10+6	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(28)	10+6	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(29)	10+5	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(31)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(32)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(33)	10+2	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-
LJH(34)	10+4	14	5	5	5	5	5	5	5	5	-

[illegible]

[C]+(15)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[C]+(20)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[C]+(23)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[C]+(30)	10+3	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[C]+(36)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(3)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(17)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(18)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(20)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(23)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(30)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(36)	10+3	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(38)	10+3	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[D]+(46)	10+5	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[E]+(8)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[E]+(15)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[E]+(20)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[E]+(23)	10+2	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[E]+(30)	10+3	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[E]+(36)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[F]+(8)	10+6	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5
[F]+(15)	10+4	7	5	5	5	5	5	5
		14	5	5	5	5	5	5

[illegible]

4. 図面の簡単な説明

第1図は合成例1で得られたN-置換-クロロアセトアニリドの¹H-核磁気共鳴スペクトルのチャートを示す。

特許出願人

徳山曹達株式会社

圖一城

